

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

①2 Übersetzung der  
eur päischen Patentschrift

①7 EP 0 512 250 B 1

①0 DE 692 26 395 T 2

⑤1 Int. Cl.<sup>6</sup>:  
C 08 F 283/06  
C 09 J 151/08  
C 09 J 5/06

②1 Deutsches Aktenzeichen: 692 26 395.0  
②5 Europäisches Aktenzeichen: 92 105 623.0  
②6 Europäischer Anmeldetag: 1. 4. 92  
②7 Erstveröffentlichung durch das EPA: 11. 11. 92  
②7 Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung beim EPA: 29. 7. 98  
②7 Veröffentlichungstag im Patentblatt: 29. 4. 99

③0 Unionspriorität:  
696674 07. 05. 91 US  
⑦8 Patentinhaber:  
National Starch and Chemical Investment Holding  
Corp., Wilmington, Del., US  
⑦4 Vertreter:  
Hagemann, Braun & Held, 81675 München  
②4 Benannte Vertragsstaaten:  
DE, DK, ES, FR, GB, IT, NL, SE

⑦2 Erfinder:  
Brady, Francis, Bethlehem, Pennsylvania 18017,  
US; Raykovitz, Gary, Flemington, New Jersey  
08822, US; Puletti, Paul, Pittstown, New Jersey  
08867, US; Kauffman, Thomas, Easton,  
Pennsylvania 18042, US; Schoenberg, Jules,  
Scotch Plains, New Jersey 07076, US

⑤4 Heisschmelze wasserempfindliche Klebstoffe für Verwendungen eines nichtgewebten Stoffes

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel 111 § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

DE 692 26 395 T 2

DE 692 26 395 T 2

27.10.99

92 105 623.0

5           Ein nicht-gewebtes Textil wird als ein durch  
Biegsamkeit, Porosität und Zusammenhalt gekennzeichnetes,  
in sich geschlossenes Netzwerk aus polymerem Material  
definiert. Die einzelnen Fasern, aus denen nicht-gewebte  
10       Textilien zusammengesetzt sind, können synthetischer Natur  
sein, aus natürlichen Vorkommen stammen oder eine Kombi-  
nation von beidem sein. Die einzelnen Fasern können mecha-  
nisch, chemisch oder thermisch miteinander verbunden sein.  
Nicht-gewebte Textilien werden kommerziell für die ver-  
15       schiedensten Anwendungen, einschließlich Isolierung, Ver-  
packung, Haushaltswischtüchern, Tüchern für chirurgische  
Zwecke, medizinische Verbände sowie in Wegwerfartikeln, wie  
Windeln, Inkontinenzprodukten für Erwachsene und Damen-  
binden, eingesetzt.

20           Bei vielen der vorgenannten Anwendungen ist es not-  
wendig, das nicht-gewebte Textil mit einem anderen Substrat  
oder einer anderen Komponente zu verkleben. Das zweite  
Substrat kann ein anderes nicht-gewebtes Textil oder ein  
andersartiges Material sein. Eine Methode, die gewöhnlich  
25       angewandt wird, das Gesamte miteinander zu verbinden,  
besteht in der Verwendung eines Schmelzklebers. Schmelz-  
kleber erlauben eine in puncto Kosten und Zeitaufwand  
effiziente Produktion, da kein Verdampfungsschritt not-  
wendig ist, wie es der Fall mit Klebstoffsystemen auf  
30       Wasser- oder Lösungsmittelbasis ist. Geeignete Schmelz-  
kleber müssen ein ausgezeichnetes Haftvermögen in bezug auf  
die betreffenden Substrate besitzen. Zur Verwendung mit  
nicht-gewebten Textilien müssen sie auch eine gute  
Biegsamkeit (oder einen guten Griff) besitzen, kein  
35       Abfärben oder Durchbluten zeigen, eine geeignete  
Viskosität, Härtungsgeschwindigkeit und Verarbeitungszeit  
besitzen, damit man sie auf handelsüblichen Ausstattungen

37.10.98

einsetzen kann, sowie schließlich akzeptable Alterungseigenschaften unter Wärmeeinfluß zeigen.

5 In letzter Zeit sind eine Reihe von Anwendungen für nicht-gewebte Textilien entwickelt worden, die es erforderlich machen, daß die Schmelzkleber eine spürbar hohe Löslichkeit, Dispergierbarkeit oder Empfindlichkeit in bezug auf Wasser zeigen. Unter diesen Umständen muß der Schmelzkleber eine dauerhafte Verbindung mit dem nicht-gewebten Textil ergeben, bis er vorher festgelegten Bedingungen (z. B. dem Einfluß von Wasser bei Zimmer-  
10 temperatur) unterworfen wird, wonach der Kleber sich von dem (den) Substrat(en) lösen sollte. Diese Fähigkeit, sich durch Wasser bei Raumtemperatur zu lösen, ist eine besonders wünschenswerte Eigenschaft auf dem Wegwerf-  
15 artikelmarkt, wo ein Wegspülen dieser Artikel und/oder die Abbaubarkeit zunehmend Probleme aufwerfen.

Es wurde nun festgestellt, daß eine spezielle Klasse  
20 von Schmelzklebern, umfassend 50-100 Gewichts-% eines Pfcopolymers, das 40-85 Gewichtsprozent von mindestens einem Vinylmonomer und 15-60 Gewichtsprozent von mindestens einem Polyalkylenoxidpolymer sowie 0-50 Gewichts-% eines verträglichen klebrigmachenden Harzes umfaßt, für das  
25 Verbinden von nicht-gewebten textilen Substraten mit sich selbst oder anderen Substraten, wobei die Kleber sich aber später unter der Einwirkung von Wasser bei Raumtemperatur lösen, empfehlenswert ist. Diese Kleber sind gekennzeichnet durch eine Glasübergangstemperatur ( $T_g$ ) von  $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $+40\text{ }^{\circ}\text{C}$ , wie festgelegt durch den Maximalwert  $G''/G'$  oder Tangens  $\delta$ , bei Messung unter Einsatz des Dynamischen Spektrometers  
30 von Rheometrics mit 10 Radiant pro Sekunde.

Die Erfindung betrifft demnach ein Verfahren zum Ver-  
35 bindenen von nicht-gewebten textilen Substraten mit ähnlichen oder verschiedenen Substraten, umfassend die Schritte: Auftragen einer geschmolzenen Schmelzkleberzusammen-

27.10.98

setzung auf mindestens ein Substrat, wobei der Kleber eine Tg von -40 °C bis +40 °C aufweist und 50-100 Gewichts-% eines Pfropfcopolymers umfassend (a) 40-85 Gewichtsprozent von mindestens einem Vinylmonomer und (b) 15-60 Gewichtsprozent von mindestens einem Polyalkylenoxidpolymer mit einem Molekulargewicht von mehr als 3.000 und einem Gehalt von mindestens 50 Gewichts-% an polymerisiertem Ethylenoxid, sowie 0-50 Gewichts-% eines verträglichen, klebrigmachenden Harzes umfaßt, und Binden eines anderen Substrats daran.

In bevorzugten Ausführungsformen ist mindestens ein Substrat ein nicht-gewebtes Textil und der Kleber umfaßt 50-95 Gewichts-% des Pfropfcopolymers sowie 5-50 Gewichts-% eines verträglichen, klebrigmachenden Harzes.

Die für die Erfindung eingesetzten Pfropfcopolymere sind eigentlich Gemische aus Pfropf- und Homopolymeren der jeweiligen Monomere. Aus praktischen Erwägungen werden diese Pfropfcopolymer/Homopolymer-Gemische in der Beschreibung und den Patentansprüchen durchgehend als "Pfropfcopolymere" bezeichnet. Das im Pfropfcopolymer bevorzugt eingesetzte Vinylmonomer ist Vinylacetat oder ein alkylsubstituiertes Acrylat, wie Methylacrylat oder Ethylacrylat oder Gemische daraus. Das bevorzugte Polyalkylenoxid ist ein Polyethylenoxidhomopolymer oder -copolymer mit einem Molekulargewicht von 3.000-100.000. Bevorzugte klebrigmachende Harze für diejenige Kleber, die klebrig gemacht werden, umfassen Kolophonium, hydriertes Kolophonium, Harzester, Terphenol- und dimerisiertes Kolophonium. Wie oben angemerkt, ist die Verwendung von klebrigmachendem Harz fakultativ, und sie kann sich tatsächlich für eine Reihe von Anwendungen als unerwünscht herausstellen. Andere übliche Zusätze, wie Weichmacher, Antioxydantien, Pigmente, Farbstoffe und Wachse, können wahlweise den Klebern zugesetzt werden.

27.10.99

Der spezielle Ansatz der gegenüber Wasser empfindlichen Schmelzkleber hängt jeweils von der beabsichtigten Endanwendung ab. Folglich sind Kleber, die 100 % des Pfropfcopolymers umfassen, besonders zum Verbinden von superabsorbierenden, aus Partikeln bestehenden Materialien mit nicht-gewebten textilen Substraten, bei denen die Fähigkeit zur Ablösung des Superabsorbens erwünscht ist, geeignet. Diese nicht klebriggemachten Schmelzkleber sind auch sehr gut für den Einsatz in Klebstoffen für Krepppapier geeignet.

Andererseits sind stark klebriggemachte Schmelzkleber aus Pfropfcopolymer, insbesondere die aus den Pfropfcopolymeren mit höherem Molekulargewicht {z. B. die mit einer höheren Viskosität als etwa 5.000 mPas (cps) bei 175 °C }, besonders geeignet für Endanwendungen, bei denen sowohl Zähigkeit und Haftvermögen als auch Biegsamkeit erwünscht sind. Als solche finden sie Verwendung als Kleber für den Aufbau von Einwegwindeln, bei denen Empfindlichkeit gegenüber Wasser bei vergleichsweise niederen Temperaturen erwünscht ist, damit ein Ablösen von den verschiedenen Substraten erfolgt, um so das Wegspülen der ganzen Windel oder eines Teils davon zu ermöglichen.

Andere Schmelzkleberzusammensetzungen, die mittlere Mengen an klebrigmachender Substanz enthalten, sind auch als Kleber auf anderen Gebieten der Herstellung nicht-gewebter Textilien geeignet, wozu Aufbaukleber, an die weniger hohe Ansprüche gestellt werden, die Herstellung von Bekleidungsstücken aus nicht-gewebten Textilien, Einwegwischtücher und dergleichen zählen.

Die in den hier beschriebenen Pfropfcopolymeren eingesetzten speziellen wasserlöslichen Polyalkylenoxidpolymere haben ein Molekulargewicht von 3.000 bis 100.000 und einen Gehalt an polymerisiertem Ethylenoxid von mindestens 50 Gewichts-%. Die Polyalkylenoxidpolymere können Homopo-

27.10.98

lymere von Ethylenoxid (einschließlich deren Ester- und Etherderivaten), Zufallscopolymere von Ethylen- und Propylenoxid, Blockcopolymere von Ethylen- und Propylenoxiden oder deren Mischungen sein. Es sei angemerkt, daß Gemische aus verschiedenen Polyalkylenoxidpolymeren verwendet werden können, und Copolymere und Homopolymere zusammen in solchen Gemischen eingesetzt werden können. Die Polymere können im Handel von Firmen, wie Union Carbide (die Polyethylenoxidpolymere, Poly(ethylenoxid/propylenoxid)copolymere und Monomethylether von Polyethylenoxid}, BASF Wyandotte (die Blockcopolymere) und Dow Chemical Company (die Homopolymere und Zufallscopolymere), bezogen werden. Speziell die Produkte von Union Carbide, die unter den Handelsbezeichnungen CARBOWAX (für Polyethylenoxide) und METHOXY CARBOWAX (für die Monomethylether von Polyethylenoxid) vertrieben werden, haben ein mittleres Molekulargewicht, auf das durch die Zahl, die nach der Handelsbezeichnung steht, annähernd hingewiesen wird.

Der Gehalt an polymerisiertem Ethylenoxid des Polyalkylenoxidpolymers sollte mindestens 50 und bevorzugt mindestens 75 Gewichts-%, bezogen auf das Polymer, betragen. Polymere mit einem niedrigeren Gehalt an polymerisierten Ethylenoxidgruppen zeigen nur eine eingeschränkte Wasserlöslichkeit und sind deshalb als die gegenüber Wasser empfindliche Polymerkomponente gemäß der vorliegenden Erfindung nicht geeignet. Polyalkylenoxidpolymere, die weniger als etwa 50 Gewichts-% an polymerisiertem Ethylenoxid enthalten, sind jedoch als Weichmacher oder Verdünnungsmittel geeignet.

Es wurde festgestellt, daß die Polyalkylenoxidpolymeren mit einem Molekulargewicht von weniger als etwa 3.000, wenn sie als das einzige Polyalkylenoxid eingesetzt werden, den Pfropfcopolymeren kein Wasserdispersionsvermögen verleihen, und deshalb sollten solche Polyalkylenoxidfraktionen mit niedrigerem Molekulargewicht bei der

27.10.98

Bestimmung des Anteils der im Pfropfcopolymer vorhandenen wasserlöslichen Komponente nicht einbezogen werden. Andererseits sind solche Polyalkylenoxide mit niedrigem Molekulargewicht (z. B. CARBOWAX 600) als Weichmacher oder Verdünner geeignet.

Die für die Pfropfcopolymere der vorliegenden Erfindung geeigneten Vinylmonomere sind vorzugsweise Vinylacetat und die mit niederem Alkyl substituierten Acrylate oder Methacrylate, wie Methylacrylat und Ethylacrylat. Andere brauchbare Vinylmonomere umfassen die Alkylester von Acrylsäure mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, Styrol sowie Vinylester, wie Vinylpropionat, Vinylbutyrat, Vinyl-2-ethylhexanoat und dergleichen. Der Einsatz der Vinylmonomere und insbesondere des Vinylacetatmonomers führt bei der Pfropfung zu einer ausreichenden Kettenverzweigung, um ein Pfropfcopolymer herzustellen, das wärmebeständig, von mittlerer Polarität und leicht in einem Kleber formulierbar ist. Das Pfropfcopolymer umfaßt vorzugsweise 40 bis 80 % von mindestens einem Vinylmonomer und etwa 15-60 Gewichts-% von mindestens einem wasserlöslichen Polyalkylenoxidpolymer, und am meisten bevorzugt enthält es 15 bis 45 Gewichts-% der Polyalkylenoxidkomponente(n).

Während verschiedene Vinylmonomere jeweils für sich allein zur Pfropfung auf den wasserlöslichen rückwärtigen Teil des Polymers eingesetzt werden können, können andere ethylenisch ungesättigte Monomere in einer geringen Menge als Comonomere zusammen mit dem Vinylmonomer verwendet werden, um besondere Eigenschaften, wie das Wasserdispergierbarkeit, das Haftvermögen, die Weichheit und dergleichen, zu verbessern. Monomere, die als Comonomere zusammen mit den Vinylmonomeren geeignet sind, umfassen 2-Hydroxyethylacrylat, N-Vinylpyrrolidon, Natriumvinylsulfonat (das Natriumsalz der Ethylensulfonsäure) und die Alkylester von Methacrylsäure mit 1-8 Kohlenstoffatomen im Alkylteil. Solche Comonomeren werden im allgemeinen in



27.10.99

Mengen von nicht mehr als etwa 40 Gewichts-%, bezogen auf die Gesamtmenge an Pfcopolymer, eingesetzt.

Sowohl die für die Erfindung verwendeten Pfcopolymeren als auch ein Verfahren zu deren Herstellung sind in US-A-3,891,584 beschrieben, dessen Offenbarung hier miteinbezogen wird.

Außer dem wasserlöslichen Polyalkylenoxidpolymer oder den wasserlöslichen Polyalkylenoxidpolymeren, dem Vinylmonomer oder den Vinylmonomeren und den wahlweise vorhandenen ethylenisch ungesättigten Monomeren kann der Kleber auch ein oder mehrere verträgliche, klebrigmachende Harze in Mengen von bis zu etwa 50 Gewichts-% enthalten. Solche Harze erzeugen in erster Linie einen Verstärkungseffekt oder einen Weichmachungseffekt (Biegsamkeitseffekt), tragen jedoch auch zur Klebrigkeit, zur speziellen Benetzbarkeit und zur Regelung der Viskosität des Pfcopolymers bei. Typisch für solche klebrigmachenden Harze sind Kolophonium (aus Gummiharz, Holz oder Tallöl) und die Kolophoniumderivate, die phenolmodifizierten Kumaron-Indenharze (vertrieben durch Neville Chemical Company aus Neville Island, Pennsylvania, unter der Handelsbezeichnung NEVILLAC), die Kumaron-Indenharze mit Erweichungspunkten von etwa 5 bis 117 °C (vertrieben durch die zuvor genannte Neville Chemical Company unter der Handelsbezeichnung CUMAR) und die phenolmodifizierten Terpenharze (vertrieben durch Arizona Chemical Company, Inc., aus Elizabeth, New Jersey, unter der Handelsbezeichnung NIREZ). (Die Erweichungspunkte der oben erwähnten Harze sind Ring- und Kugelerweichungspunkte, die mit Hilfe der ASTM-Methode E28-58T bestimmt wurden). Wie zuvor angemerkt und wie in den hier aufgeführten Beispielen veranschaulicht, werden bei der Herstellung von für bestimmte Anwendungen besonders bevorzugten Klebern Mengen an klebrigmachender Substanz von mehr als etwa 25 Gewichts-% eingesetzt.

27.10.99

Der Kleber kann auch geringe Mengen, d. h. bis zu etwa 25 Gewichts-%, eines verträglichen weichmachenden Öls und/oder Wachsverdünnungsmittel enthalten. Besonders geeignet sind Verdünnungsmittel, die aus der aus Glyzerinmono- und Glyzerindistearat, synthetischen langkettigen linearen polymeren Alkoholen, Stearinsäure, wachsartigen Materialien mit hoher Säurezahl aus Mono- und Dicarbonsäuren, von Montanwachs abgeleitete saure Wachse, Stearylalkohol, hydriertem Rizinusöl, ethoxylierten Alkoholen, 12(OH)-Stearinsäure und Stearyl-Cetylalkohol bestehenden Gruppe ausgewählt sind.

Die sich ergebenden Kleber der vorliegenden Erfindung sind gekennzeichnet durch ihre Fähigkeit, eine dauerhafte Bindung mit einem nicht-gewebten textilen Gegenstand zu schaffen, erfüllen im übrigen die außergewöhnlichen Anforderungen der Anmeldung (einschließlich Biegsamkeit, kein Durchbluten sowie einer für die maschinelle Verarbeitbarkeit geeigneten Viskosität) und lösen sich später nach einer gewünschten Verweildauer unter der Einwirkung von Wasser bei Raumtemperatur auf. Die hier beschriebenen Kleber besitzen auch eine außergewöhnlich gute Wärmebeständigkeit, was sie von anderen feuchtigkeitsempfindlichen Ausführungen unterscheidet. Zusätzlich zeigen viele der hier beschriebenen Zusammensetzungen eine für Spray- oder Schmelzblasauftragsverfahren notwendige lange Verarbeitungszeit sowie Druckempfindlichkeit, kristallisieren aber später (z. B. nach mehreren Stunden oder Tagen) langsam aus. Diese Kristallisation führt zu einer Abnahme der Klebrigkeit an der Oberfläche, setzt jedoch das Haftvermögen nicht spürbar herab. Außerdem verbessert die Kristallisation sogar solche Eigenschaften, wie Schäl- und Scherfestigkeit bei erhöhter Temperatur sowie den Widerstand gegen Durchschlagen.

27.10.98

Das Klebstoffprodukt kann auf ein Substrat, wie einen nicht-gewebtem textilen Gegenstand, mit Hilfe einer Reihe von Verfahren aufgebracht werden, einschließlich Bestreichen oder Besprühen in einer Menge, die ausreicht, daß der Gegenstand auf einem anderen Substrat, wie einem nicht-gewebten Textil oder einem andersartigen Material, wie einem Hochdruck-Polyolefin oder einem anderen üblicherweise verwendeten wasserundurchlässigen Substrat, haftet. Wenn das nicht-gewebte Textil der Einwirkung von Wasser von einer bestimmten Temperatur während einer bestimmten Zeitspanne ausgesetzt wird, löst es sich ab.

Die folgenden Beispiele veranschaulichen sowohl die Herstellung von geeigneten Schmelzklebern als auch deren Einsatz bei einer Vielzahl von Anwendungen. In den Beispielen sind alle Teile Gewichtsteile und alle Temperaturangaben in Grad Celsius ausgedrückt, es sei denn, es ist etwas anderes angegeben. Die für die Erfindung verwendeten Testverfahren lauten wie folgt:

#### Testverfahren

Die Schmelzviskositäten der Schmelzkleber/-binder wurden auf einem Brookfield-Viskosimeter Modell RVT Thermosel mit einer 27iger Spindel bei 20 oder 50 Umdrehungen pro Min. bestimmt.

Die Wärmestabilität der Proben aus Kleber/Binder wurde auf folgende Weise bestimmt: Eine Probe von 60 Gramm wurde bei 175°C während 72 Stunden in einem abgedeckten Glasgefäß gelagert, und es wurde beobachtet, ob sich Gel oder Haut bildete oder ob sich irgendeine störende Farbänderung zeigte. Die Viskositätsänderung auf Grund dieser Alterung durch Wärmeeinfluß wurde danach, wie oben angegeben, bestimmt.

27.10.98

Die Glasübergangstemperatur,  $T_g$ , der Proben wurde unter Verwendung eines Dynamischen Analysators (RDA-700) von Rheometrics bestimmt. Im einzelnen: Es wurde 0,15-0,20 Gramm der Probe zwischen parallelen, 8 mm dicken Platten, die sich in einem Abstand von 2,0 - 2,5 mm voneinander befanden, angebracht. Danach wurde die Probe bis annähernd -80 °C abgekühlt und sodann mit 5 °C/Minute bis > 60 °C erhitzt, währenddessen sie mit einer Geschwindigkeit von 10 Radiant/Sekunde sinusförmig belastet wurde. Die Belastung wurde während des gesamten Tests von 0,03 % bis zu einem Maximum von 10 % eingestellt. Die Temperatur, die dem Maximalwert für das Verhältnis Verlustmodul  $G''$  zu Lagerungsmodul  $G'$  (dieses Verhältnis wird auch als Tangens Delta bezeichnet) entspricht, wird als Glasübergangstemperatur,  $T_g$ , aufgezeichnet.

Verklebung von nicht-gewebten textilen Polypropylenen mit nicht-gewebten textilen Polypropylenen, die für die Prüfung des Haftvermögens von nicht-gewebten Textilien und Wasserempfindlichkeit eingesetzt werden, wurden hergestellt, indem man einen 1,0 - 1,5 mm breiten (komprimierten) Tropfen geschmolzenes Schmelzmaterial bei 177 - 191 °C (350 - 375 °F) auf ein nicht-gewebtes Textilstück der Größe 5 cm x 15 cm (2" x 6") aufbrachte und dieses mit einem zweiten nicht-gewebten Textilstück derselben Größe zusammenfügte. Die Verarbeitungszeit betrug <2 Sekunden und die Verweilzeit 10 Sekunden. Diese Verklebung ließ man danach bei 21 °C (70 °F) und 50 % relativer Feuchtigkeit altern.

Das Haftvermögen nicht-gewebter Textilien wurde von verschiedenen Proben bestimmt, indem man die Verklebung des nicht-gewebten textilen Polypropylen vom nicht-gewebten textilen Polypropylen unter Schälern mit 12 "/min auf einem Instron-Prüfgerät auseinanderzog. Die Verklebung ist gekennzeichnet durch das Vorhandensein oder Fehlen des Ziehens von Fäden (F. T.) und/oder die Größe des Widerstands

27.10.98

{N/cm (lbs /in)}. Wenn F. T. an allen drei Proben festgestellt wurde, wurde die Größe des Widerstands nicht aufgezeichnet. Übliche, zum Verbinden von nicht-gewebten Textilien eingesetzte Schmelzkleber zeigen typischerweise Fäden ziehende Verklebungen (F. T.) und/oder einen Widerstand von  
5  $\geq 0,35 \text{ N/cm}$  ( $\geq 0,2 \text{ lb/in}$ ).

Die Empfindlichkeit gegenüber Wasser von mit den Proben aus Schmelzkleber/-binder hergestellten nicht-gewebten textilen Verklebungen wurde bestimmt, indem man  
10 nicht-gewebtes textiles Polypropylen auf nicht-gewebtem textilem Polypropylen {das man 1 Woche bei  $21^\circ \text{C}$  ( $70^\circ \text{F}$ ) und  $50\%$  relativer Feuchtigkeit hat altern lassen} bei unterschiedlichen Temperaturen während unterschiedlicher Zeiträume in Wasser eintauchte. Nach einem festgelegten  
15 Zeitintervall (z. B. 15 Minuten) wurde die Verklebung nicht-gewebten Textils auf nicht-gewebtes Textil dem Wasser entnommen und einem manuellen Abschälversuch unterzogen. Die Verklebung wird als Fäden ziehend (F. T.) oder keine  
20 Fäden ziehend (kein F. T.) gekennzeichnet. Übliche für nicht-gewebte Textilien eingesetzte Schmelzkleber würden sowohl vor als auch nach dem Eintauchen Fäden ziehende Verklebungen und/oder Verklebungen mit hohem Widerstand ergeben. Die für die vorliegende Erfindung verwendeten  
25 Kleber sind durch unterschiedlich große Empfindlichkeiten gegenüber Wasser gekennzeichnet, was nach dem Eintauchen in Wasser während eines festgelegten Zeitintervalls und/oder bei einer festgelegten Temperatur zu einer Abnahme der Festigkeit der Verbindung zum nicht-gewebten Textil führt.

#### Schältestverfahren mit $180^\circ$ Drehung

Die Proben werden wie folgt hergestellt. Es wurde ein Klebstoffstreifen bei ungefähr  $149-163^\circ \text{C}$  ( $300-325^\circ \text{F}$ ) mit  
35 einer Streifengeschwindigkeit von  $30 \text{ m/min}$  ( $100 \text{ fpm}$ ) auf ein nicht-gewebtes Textil extrudiert, um einen Klebstoffstreifen von ungefähr  $0,5 \text{ mm}$  Stärke mit einem Schicht-

27.10.98

gewicht von ungefähr 1,6-2,4 mg/cm (4-6 mg/linearen Inch) zu bilden. Ein zweites nicht-gewebtes textiles Substrat wurde unmittelbar darauf unter einem Bindungsdruck von ungefähr 415 kPa (60 psi) mit der Klebstoffrand verbunden. 5 Danach wurden Proben durch Ausschneiden parallel zu den Klebstoffstreifen hergestellt, wobei man mindestens 0,3125 cm (1/8 ") auf jeder Seite der äußeren Klebstoffstreifen beließ. Die Proben wurden über Nacht bei einer konstanten Temperatur von 21 °C (70 °F) und einer konstanten relativen 10 Feuchtigkeit von 50 % konditioniert.

Instron-Prüfung: Die Enden von jeder Probe wurden umwickelt und danach in Klemmbacken gesteckt, wobei das mit Kleber versehene nicht-gewebte Textil in die feststehende 15 Backe gesteckt wurde. Die Probe wurde mit einer Geschwindigkeit des Kreuzkopfes von 30 cm/min (12 Inch/min) und einer Vorschubgeschwindigkeit von 5 cm/min (2 Inch/min) unter Schälern mit einer Drehung von 180° auseinandergezogen. Der mittlere Schälwert wurde für jedes getestete 20 Produkt in Gramm oder Pound aufgezeichnet. Die Verformung und die Art des Versagens (ob hinsichtlich Adhäsion oder Kohäsion) wurden ebenfalls aufgezeichnet.

#### Beispiel

25 Ein geeignetes Pfropfcopolymer aus 30 Teilen Polyethylenoxid (PEG) und 70 Teilen Vinylacetat (VA) wurde hergestellt, indem man die folgenden Bestandteile in eine 1 Liter-Flasche einfüllte:

Polyglykol E-8000 (Dow Chemical Co.)	150	g
t-Butylperoxyperbenzoat	0,4	g

30 Die Flasche wurde mit einem Rührer aus nichtrostendem Stahl, einem Thermometer, einem Kondenser, einem Einlaßrohr für Stickstoff und einem 350 g Vinylacetat enthaltenden Tropftrichter ausgestattet. 45 ml des Vinylacetats

27.10.98

wurden zugegeben, und das Gemisch wurde unter Rückfluß erhitzt. 1 ml einer 10%igen Lösung von 70 % Benzoylperoxid in Ethylacetat wurde zugegeben, um die Polymerisation einzuleiten. Der verbleibende Rest des Vinylacetats wurde während eines Zeitraums von drei Stunden zugegeben. Das Reaktionsgemisch wurde auf 155 bis 160 °C erhitzt und während 15 Minuten auf dieser Temperatur gehalten. 1,5 Gramm Antioxidans Irganox 1010 (Ciba-Geigy) wurden zugegeben, und das verbleibende Monomer wurde durch Vakuumdestillation entfernt. Die Viskosität des Produkts betrug 2,525 mPas (cps) bei 177 °C (350 °F).

Ähnliche Pfropfcopolymere wurden hergestellt, indem man andere Verhältnisse von Vinylacetat und PEG 8000, wie in Tabelle 1 gezeigt, einsetzte. Die sich daraus ergebenden Copolymere wurden danach "rein" als Kleber für nicht-gewebte Textilien getestet. Die Ergebnisse der Tests werden auch in Tabelle 1 gezeigt.

Tabelle 1

	1	2	3	4
60 Vinylacetat/40 PEG-8000-Copolymer	100,0	----	----	----
70 Vinylacetat/30 PEG-8000-Copolymer	----	100,0	----	----
80 Vinylacetat/20 PEG-8000-Copolymer	----	----	100,0	----
90 Vinylacetat/10 PEG-8000-Copolymer	----	----	----	100,0
Viskosität @ 177 °C (350 °F)	1.310 mPas (cps)	2.500 mPas (cps)	6.475 mPas (cps)	13.775 mPas (cps)
Glasübergangstemperatur (Tg)	-8 °C	+5 °C	+20 °C	+36 °C
Haftvermögen von nicht-gewebten Textilien	F.T.	F.T.	F.T.	F.T.

27.10.98

Fortsetzung von Tabelle 1:

	1	2	3	4
<b>Empfindlichkeit gegenüber Wasser</b>				
15 min/21 °C (70 °F)	Kein F.T.	Kein F.T.	F.T.	F.T.
24 Std./21 °C (70 °F)	Kein F.T.	Kein F.T.	F.T.	F.T.
15 min/38 °C (100 °F)	Kein F.T.	Kein F.T.	F.T.	F.T.
24 Std./38 °C (100 °F)	Kein F.T.	Kein F.T.	Kein F.T.	F.T.
<b>Wärmestabilität {72 Std./177 °C (350 °F)}</b>				
<b>Farbe</b>	orange	dunkel-orange	dunkel-orange	dunkelbraun
<b>Gel</b>	keines	keines	keines	keines
<b>Haut</b>	keine	keine	keine	keine
<b>† Viskositätsänderung</b>	-38,9 †	-7,5 †	-7,3 †	+3,2 †

Die in Tabelle 1 gezeigten Ergebnisse demonstrieren die Eignung der nicht klebriggemachten Pfropfcopolymere, die mehr als 10 % gepfropftes Polyalkylenoxid enthalten und durch Glasübergangstemperaturen zwischen -40 °C und +40 °C gekennzeichnet sind, um eine Fäden ziehende Verklebung nicht-gewebter Textilien zu schaffen, wobei diese Verklebung außerdem entweder bei 21 °C oder bei 38 °C (70 °F oder 100 °F) Empfindlichkeit gegenüber Wasser zeigt. Diese nicht konfektionierten Copolymeren zeigen auch eine gute Wärmestabilität (es bilden sich keine Haut und kein Gel).

15

In den nachfolgenden Beispielen wurden verschiedene Pfropfcopolymere mit verschiedenen klebrigmachenden Harzen und/oder Ölen angesetzt und als Kleber für nicht-gewebte textile Substrate getestet.



27.10.90

TABELLE 2

	5	6	7	8	9	10	11	12
60 Vinylacetat/ 25 PEG-8000/15 Ucon 75H-90.000	100,0	70,0	---	---	---	---	---	---
brasilianisches Gummiharz	---	30,0	---	20,0	30,0	---	---	---
35 Vinylacetat/ 35 Vinyl-2-ethyl- hexanoat/ 25 Ucon 75H-90.000 15 PEG-8000	---	---	100,0	80,0	70,0	75	75	---
Permalyne 85	---	---	---	---	---	25	---	---
Dymere	---	---	---	---	---	---	25	---
Stereon 840A	---	---	---	---	---	---	---	21
Zonatac 105	---	---	---	---	---	---	---	60
Kaydol USP weißes Mineralöl	---	---	---	---	---	---	---	19
Viskosität bei 177°C (350°F)	3.275 mPas (cps)	920 mPas (cps)	9.500 mPas (cps)	2.810 mPas (cps)	1.855 mPas (cps)	3.763 mPas (cps)	3.800 mPas (cps)	1.530 mPas (cps)
Glasübergangstem- peratur (Tg)	-5°C	+10°C	+4°C	+3°C	+8°C	+22°C	+11°C	+16°C
Haftvermögen von nicht-gewebten Tex- tilien (pp/pp-12 "/min)	F.T.	F.T.	nicht getestet	0,88 N/cm (0,5 lb/in)	F.T.	0,88 N/cm (0,5 lb/in)	1,4 N/cm (0,8 lb/in) F.T.	F.T.
Schälung mit 180°- Drehung von LDPE/ PP- nicht-gewebten Textilien (12"/min)	kein F.T. 0,18 N/cm (0,1 lb/in)	kein F.T. 0,53 N/cm (0,3 lb/in)	kein F.T. 0,18 N/cm (0,1 lb/in)	F.T. (1 Ver- klebung) 0,44 N/cm (0,25 lb/in) (2 Ver- klebun- gen)	kein F.T. 0,88 N/cm (0,5 lb/in)	F.T. (1 Ver- klebung) 0,70 N/cm (0,4 lb/in) (2 Ver- klebun- gen)	F.T.	F.T.
Wasserempfindlich- keit (pp/pp) 15 min/21°C (70°F) 24 Std./21°C (70°F) 15 min/38°C (100°F) 24 Std./38°C (100°F)	kein F.T. kein F.T. kein F.T. kein F.T.	F.T. kein F.T. F.T. kein F.T.	nicht getestet	kein F.T. kein F.T. kein F.T. kein F.T.	F.T. F.T. F.T. F.T.	kein F.T. kein F.T. kein F.T. kein F.T.	kein F.T. kein F.T. kein F.T. kein F.T.	F.T. F.T. F.T. F.T.
Wärmostabilität (72 Std./177°C) (350°F)			nicht getestet					
Farbe	schwarz	orange		dunkel- braun	schwarz	braun	dunkel- braun	hellgelb
Gel	keines	keines		keines	keines	keines	keines	keines
Haut	keine	keine		keine	keine	keine	keine	keine
↓ Viskositätsän- derung	-65,3%	-29,9%		-66,9%	-59,6%	-50,0%	-67,1%	-24,8%

Ucon 75H-90.000 ist ein ungefähr 75% Ethylenoxid enthaltendes Copolymer aus Ethylenoxid und Propylenoxid, das von Union Carbide bezogen werden kann.

Permalyne 85 ist ein Glycerinester von Kolophonium, das von Hercules Inc. bezogen werden kann.

Dymere ist ein polymerisiertes Kolophonium, das von Hercules Inc. bezogen werden kann.

Stereon 840A ist ein Styrol-Butadien-Blockcopolymer, das von Firestone bezogen werden kann.

Zonatac 105 ist ein Styrol-Polyterphenharz von Arizona Chemicals.

Kaydol USP weißes Mineralöl kann von Witco bezogen werden.

27.10.98

Die in Tabelle 2 aufgeführten Ergebnisse zeigen, daß ein Pfropfterpolymer (5) auf der Basis Vinylacetat, Polyethylenoxid und Poly(propylenoxid/ethylenoxid) geeignet ist, brauchbare wasserempfindliche Verklebungen sowohl bei den Konstruktionen aus nicht-gewebtem Textil/nicht-gewebtem Textil als auch bei den Konstruktionen aus nicht-gewebtem Textil/LDPE zu schaffen, wenn man es mit einem handelsüblichen Schmelzkleber (12) auf der Basis eines Blockcopolymers vergleicht. Die Einarbeitung eines verträglichen Harzes (6) erhöht die Haftfestigkeit auf Hochdruck-Polyethylen und ist ebenfalls zweckmäßig. In Tabelle 2 ist auch der Einsatz eines auf Vinylacetat, Vinyl-2-ethylhexanoat, Polyethylenoxid und Poly(propylenoxid/ethylenoxid) basierenden Pfropfcopolymers (7) gezeigt. Obwohl das Pfropfcopolymer (7) oder ähnliche Copolymerzusammensetzungen sich ohne weitere Konfektionierung als brauchbar herausstellen können, zeigt sich, daß der Ansatz mit verträglichen Harzen die Brauchbarkeit der Zusammensetzung verbessert. Manche Eigenschaften, wie die Haftfestigkeit LDPE/nicht-gewebtes Textil und die Viskosität, werden durch die Zugabe von verträglichen Harzen, wie Gummiharz, in Mengen von zum Beispiel 20 und 30 Prozent (8 und 9) verbessert. Ebenfalls brauchbar als verträgliche Harze sind Harzester (10) und dimerisiertes Kolophonium (11).

### Beispiel 3

Ein Pfropfcopolymer aus 70 Gewichtsprozent Vinylacetat und 30 Gewichtsprozent Polyethylenoxid mit einem Molekulargewicht von 8.000 wurde, wie in Beispiel 1 beschrieben, hergestellt.

27.10.90

TABELLE 3

	13	14
70 Vinylacetat/30 PEG-8000 Pffropfcopolymer geruchfreies Kolophonium	100,0	90 10
Glasübergangstemperatur (Tg) Viskosität bei 177 °C (350 °F)  Verarbeitungszeit Haftvermögen auf Gewebe Haftvermögen auf nicht-gewebtem textilem Polypropylen Sprühmerkmale	+5 °C 2.750 mPas (cps) >15 Sek. F.T.  F.T. gut	+9 °C 975 mPas (cps) >15 Sek. F.T.  nicht getestet gut
"Durchschlagen" auf Gewebe bei 16-20 g/m <sup>2</sup> 21 °C (70 °F)/81 % relative Feuchtigkeit 3 Tage 21 °C (70 °F)/81 % relative Feuchtigkeit 15 Tage Schälung (Verklebung 1 Tag gealtert) Schälung (Verklebung 1 Woche gealtert) Scherung (Verklebung 1 Tag gealtert) Scherung (Verklebung 1 Woche gealtert)	gut - kein Durchschlagen keines  keines  100 °F 110 °F 110 °F 120 °F	schlecht - Durchschlagen
Wärmestabilität {72 Std./177 °C (350 °F)}  Farbe Haut Gel % Viskosität	  orange keine keines -17,3 %	  orange keine keines -25,1 %

5 Dieses Beispiel zeigt ein für Anwendungen mit nicht-  
gewebten Textilien (13) geeignetes Schmelzmaterial. Bei  
diesem Material wird keine klebrigmachende Substanz  
eingesetzt, aber es erzeugt dennoch eine gute Verklebung.  
Der Einsatz einer klebrigmachenden Substanz (14) ergibt ein  
Durchschlagen, was für diesen speziellen Ansatz unerwünscht  
10 ist. Schmelzansatz (13) zeigt, wie nützlich die Eigenschaft

27.10.98

einer verzögerten Kristallisation ist, da dadurch das "Durchschlagen" reduziert wird und sich eine Erhöhung der Wärmebeständigkeit über die Zeit ergibt. Die Einarbeitung von klebrigmachendem Harz ergibt für viele solcher Systeme (z. B. 14) eine Verzögerung der Kristallisation, was nachteilig für das Verbinden von mehrlagigem Gewebe ist.

#### BEISPIEL 4

In diesem Beispiel wurde ein Pfropfcopolymer, umfassend 45 Gewichtsteile Vinylacetat, 15 Teile Butylacrylat, 25 Teile Poly(propylenoxid/ethylenoxid) (75H-90.000) und 15 Teile Polyethylenoxid (PEG-8000), "rein" getestet und als Kleber für wasserempfindliche Anwendungen nicht-gewebter Textilien angesetzt.

Tabelle 4

	15	16
45 Vinylacetat/ 15 Butylacrylat/ 25 U Conn 75 H/90.000 15 PEG-8000	100,0	70,0
Gummiharz	---	30,0
Viskosität @ {177 °C (350 °F)}	2.725 cps	nicht getestet
Haftvermögen von nicht-gewebten Textilien	0,39 N/cm (0,22 lb/in)	0,74 N/cm (0,42 lb/in)
Haftvermögen nicht-gewebtes Textil/LDPE	0,35 N/cm (0,20 lb/in)	0,91 N/cm (0,52 lb/in)
Empfindlichkeit gegenüber Wasser		
15 min/21 °C (70 °F)	Kein F.T.	Kein F.T.
24 Std./21 °C (70 °F)	Kein F.T.	Kein F.T.
15 min/38 °C (100 °F)	Kein F.T.	Kein F.T.
24 Std./38 °C (100 °F)	Kein F.T.	Kein F.T.

27.10.98

Fortsetzung von Tabelle 4:

	15	16
Wärmestabilität {72 Std./177 °C (350 °F)}		
Farbe	dunkelbraun	dunkelbraun
Haut	teilweise	vollständig
Gel	keines	keines
% Viskositätsänderung	-61,1 %	nicht getestet

5 Das reine Polymer (15) zeigt sowohl ein akzeptables Haft-  
vermögen auf nicht-gewebtes Textil und LDPE als auch eine  
akzeptable Empfindlichkeit gegenüber Wasser. Durch die  
Einarbeitung von 30 % Harz (16) werden die Werte für das  
Haftvermögen zu beiden Substraten erhöht, ohne daß die  
10 Empfindlichkeit gegenüber Wasser negativ beeinflußt wird,  
und deshalb sind solche Ansätze mit einem hohen Anteil an  
klebrigmachender Substanz zum Verbinden von Substraten  
besonders geeignet, wie sie beim Aufbau von Windeln  
eingesetzt werden. Obwohl die Werte für das Entstehen von  
15 Verfärbungen und die Hautbildung schlechter als die in den  
vorherigen Beispielen beschriebenen sind, muß beachtet wer-  
den, daß keinem Ansatz nachträglich ein Antioxydans zuge-  
geben wurde. Die Zugabe von Antioxydantien, wie sie zum  
Beispiel von den Fachleuten eingesetzt werden, führt zu  
20 einer Reduzierung der Hautbildung.

\* \* \*

27.10.98

92 105 623.0

5

#### PATENTANSPRÜCHE

1. Verfahren zum Verbinden von nicht-gewebten textilen Substraten mit ähnlichen oder verschiedenen Substraten, umfassend die Schritte: Auftragen einer geschmolzenen Schmelzkleberzusammensetzung auf mindestens ein Substrat, wobei der Kleber eine Tg von -40 bis +40°C aufweist und 50-100 Gewichts-% eines Pfropfcopolymers, umfassend (a) 40-85 Gewichtsprozent von mindestens einem Vinylmonomer und (b) 15-60 Gewichtsprozent von mindestens einem Polyalkylenoxidpolymer mit einem Molekulargewicht von mehr als 3000 und einem Gehalt von mindestens 50 Gewichts-% an polymerisiertem Ethylenoxid, sowie 0-50 Gewichts-% eines verträglichen klebrigmachenden Harzes umfaßt, und Binden eines anderen Substrats daran.

2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei mindestens ein Substrat ein nicht-gewebtes Textil ist und wobei die Kleber 50-95 Gewichts-% des Pfropfcopolymers und 5-50 Gewichts-% eines verträglichen klebrigmachenden Harzes umfaßt.

3. Verfahren nach Anspruch 1, wobei ein superabsorbierendes, aus Partikeln bestehendes Polymer mit einem nicht-gewebten textilen Substrat verbunden wird und wobei der Kleber 100 % des Pfropfcopolymers umfaßt.

4. Verfahren nach Anspruch 1, wobei der Kleber zusätzlich bis zu 25 Gewichts-% eines Verdünnungsmittels umfaßt, das aus der aus Glyzerinmono- und Glyzerindistearat, synthetischen langkettigen, linearen polymer n Alkoholen, Stearinsäure, wachsartigen Materialien mit hoher Säurezahl aus Mono- oder Dicarbonsäuren, von Montanwachs abgeleitete

27.10.99

saure Wachse, Stearylalkohol, hydriertem Rizinusöl, ethoxylierten Alkoholen, 12(OH)-Stearinsäure und Stearyl-Cetylalkohol bestehenden Gruppe ausgewählt ist.

5

\* \* \*